

Title	電子線還元法による担持触媒ナノ粒子の構造制御因子の研究
Author(s)	岡崎, 倫久
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/61763
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

論文内容の要旨

氏名 (岡崎 倫久)

論文題名

電子線還元法による担持触媒ナノ粒子の構造制御因子の研究

論文内容の要旨

本論文では、電子線還元法による担持触媒ナノ粒子の合成について研究を行った。白金(Pt)に他の金属種(M)を添加したPtM系ナノ粒子について、PtM合金の組成およびPtとMOxの界面について着目し、それらの構造を制御する因子について検討を行った。生成した担持触媒ナノ粒子の構造を材料解析結果から推定し、合成条件と比較することで、構造制御因子を検討した。以下に本論文の構成を述べる。

第1章では、緒言として触媒合成に関する研究の現状について述べた。既存の合成法の特徴および課題について説明し、構造制御因子を検討する必要性を述べた。そして、本論文の目的、研究の構成を提示した。

第2章では、電子線還元法によってナノ粒子を合成した手順と生成したナノ粒子の構造や活性を評価する手法を記述した。

第3章では、Ptに添加するM種が生成するナノ粒子の構造へ与える影響を検討した。既存の研究ではPtにMを添加したナノ粒子の構造を制御する因子の解明が不十分であった。この課題を解決するために、M種の異なるナノ粒子を合成し、Mの物性と生成した構造との相関を調査した。Mにはロジウム(Rh)、銅(Cu)、ルテニウム(Ru)、スズ(Sn)を選択し、PtM系ナノ粒子を電子線還元法を用いて合成した。M種の還元電位、酸化物生成の自由エネルギー、結晶構造が生成するナノ粒子の構造を制御する因子であることを明らかにした。

第4章では、金属イオンの担体への吸着が合金粒子の組成に与える影響を検討した。電子線還元法の特徴のひとつとして、合金が生成しやすいことが挙げられ、その特徴を活用するために合金粒子の組成を制御する因子を検討した。金属イオンを還元する反応場を溶液中と担体上に分けることに着想し、金属イオンの吸着量が異なる条件でナノ粒子を合成した。Ptに添加する金属としてRh、Cu、Ruを選択した。Ptに添加した金属イオンが溶液中に存在する割合が高い場合に合金中の添加金属の組成比が高くなることを指摘した。また、溶液中と担体上の金属イオンについてそれぞれの還元機構を推定した。

第5章では、照射溶液中の溶存酸素が主触媒と酸化物助触媒との界面に与える影響を検討した。MOxがPtの助触媒となる材料において、合成時の酸素がPtとMOxの界面に影響を与えると着想し、溶存酸素量を変化させた条件でナノ粒子を合成した。Ptに添加する金属としてSnを選択した。溶存酸素量が多い場合にはPtとSnO₂の界面が多く観察され、その触媒活性は飛躍的に向上したことを指摘した。また、溶存酸素が金属イオンの還元機構に与える影響について推定した。

第6章は本論文のまとめであり、本研究で得られた研究成果を総括した。

本論文では、電子線還元法による担持触媒ナノ粒子の合成において、構造制御因子の幾つかを明らかにした。これらの構造制御因子を参考に合成条件を選択することで、高性能なナノ粒子触媒を合成する可能性を示している。本論文の成果は放射線科学の触媒材料分野への応用の可能性を広げるものである。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (岡 崎 倫 久)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	准教授	清野 智史
	副 査	教授	山本 孝夫
	副 査	教授	上西 啓介
	副 査	准教授	中川 貴
論文審査の結果の要旨			
<p>本論文は、電子線還元法による担持触媒ナノ粒子の合成についての研究成果を記している。白金(Pt)に他の金属種(M)を添加した PtM 系ナノ粒子について、PtM 合金の組成および Pt と MO_x の界面について着目し、それらの構造を制御する因子について検討を行っている。生成した担持触媒ナノ粒子の構造を材料解析結果から推定し、合成条件と比較することで、構造制御因子の検討がなされた。</p> <p>第 1 章では、緒言として本研究の目的、研究の構成が述べられている。</p> <p>第 2 章では、電子線還元法によるナノ粒子の合成手順と、生成したナノ粒子の構造や活性を評価する手法が記されている。</p> <p>第 3 章では、Pt に添加する金属種が生成するナノ粒子構造に与える影響の検討がなされた。合成条件を統一し、Pt に Rh、Cu、Ru、Sn を添加したナノ粒子が合成された。Pt に添加する金属の還元電位、酸化物生成の自由エネルギー、結晶構造が構造制御因子であることが指摘された。</p> <p>第 4 章では、金属イオンの担体への吸着が合金粒子の組成に与える影響が検討された。金属イオンの吸着量が異なる条件で PtRh、PtCu、PtRu 合金ナノ粒子が合成された。Pt に添加した金属イオンが溶液中に存在する割合が高い場合に合金中の添加金属の組成比が高くなることが指摘された。また、溶液中と担体上の金属イオンについてそれぞれの還元機構が議論された。</p> <p>第 5 章では、照射溶液中の溶存酸素が主触媒と酸化物助触媒との界面に与える影響の検討がなされた。溶存酸素量を変化させた条件で PtSn ナノ粒子が合成された。溶存酸素量が多い場合には Pt と SnO₂ の界面が多く観察され、結果として触媒活性が飛躍的に向上したことが指摘された。また、溶存酸素が金属イオンの還元機構に与える影響についての議論がなされた。</p> <p>第 6 章では本論文のまとめであり、本研究において得られた研究成果を総括している。</p> <p>以上のように、本論文では電子線を利用した担持触媒ナノ粒子合成技術において、その構造を制御する因子を明らかにしている。これらの成果は、放射線化学、触媒化学、ナノ粒子工学といった分野での活用が期待される新たな知見である。</p> <p>よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。</p>			